

博 士 論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

氏名	田村 諭
学位名	博士 (工学)
学位番号	甲 第 791 号
論文題目	ポリジメチルシロキサン複合体の電場応答性—極性基含有化合物の添加効果—
論文審査委員	主査 清野 竜太郎 林 卓哉 酒井 俊郎 錦織 広昌 奥崎 秀典 (山梨大学)

(博士論文審査の結果の要旨)

高分子アクチュエータはその柔軟性や軽量性、加工しやすさなどを特徴とした材料で、マイクロポンプやロボット、人工筋肉などへの応用が期待されている。シリコーンは高い耐熱性や耐薬品性を持ちながら、弾性率や成形性の自由度が高いエラストマーであることから高分子アクチュエータとして有望な材料とされている。しかしその一方で、高い電気絶縁性も併せ持つことから電場による駆動は難しい材料であると考えられている。本論文は、分子内に誘電率の高い官能基を有する極性基含有化合物をシリコーンと複合化できれば、電場応答性を有するシリコーンアクチュエータを作製できるのではないかとこのコンセプトに基づき、シリコーンの一種であるポリジメチルシロキサン (PDMS) に極性基含有化合物を添加することにより電場応答型の PDMS/極性基含有化合物複合体フィルムの開発を目指したものである。電場応答性の一つの現象である複合体の屈曲変形を測定し、複合体の断面構造の観察や電気的特性の評価、空間電荷分布の解析などを行い、変形機構の解明を試みている。

第 1 章の序論では研究の背景と目的について述べ、高分子アクチュエータの概略と誘電現象および空間電荷分布に関して記述している。第 2 章では複合体の屈曲変形におよぼす極性基含有化合物の影響を検討している。極性基含有化合物として、カルボキシル基やフルオロアルキル基、アミノ基などを有する変性シリコーンオイル、分子内にシアノ基を有するシアノエチルスクロース (CR-U)、イオン液体などを使用した。これらを付加反応型 PDMS に添加して複合体フィルムを作製した。複合体フィルムの両表面に電極として極めて薄い金箔を貼り、電極間に電場を印可して、複合体フィルムの屈曲方向や屈曲量を測定している。その結果、フルオロアルキル基変性シリコーンオイル (FL) を含有する複合体 (PDMS/FL) と CR-U を含有する複合体 (PDMS/CR-U) が大きな屈曲変形を示すことを確認した。屈曲変形は極性基含有化合物の含有量の増加とともに増加することも確認している。複合体フィルムの空間電荷分布測定から、フィルム中には非対称な空間電荷分布が存在することを示し、試料内部の電荷蓄積は極性基含有化合物の含有量や電場の増加とともに増加することも見出した。第 3 章では PDMS/CR-U 複合体の屈曲変形挙動と形態 (相分離と断面構造) の関係を詳細に調査している。複合体作製の際、CR-U は高粘度で PDMS との混合が難しかったため、CR-U をその良溶媒であるアセトンとテトラヒドロフランまたはこれらの割合を変えた溶媒に溶解し、CR-U の粘度を下げて PDMS に添加している。その際に、使用する溶媒により複合体の構造は大きく異なることを確認した。テトラヒドロフランの割合が大きい混合溶媒で作製した複合体は PDMS マトリックス中に比較的大きな球状の CR-U が分散し、加えて、一方の表面だけに密なスキン層を有する非対称な断面構造を示すことを確認した。他方、アセトンの割合が大きい溶媒で作製した複合体フィルムでは小球径 CR-U がフィルム全体に均一に分散する対称構造を示すことを確認している。複合体フィルムに電場を印加したところ、対称構造の複合体フィルムでは、ほとんど屈曲変形は観測されなかったのに対し、表面にスキン層を有する非対称な複合体フィルムの場合は、電場の印加によりスキン層側とは逆の方向に変形する屈曲挙動を示すことを見出している。この屈曲方向は電場を反転させても変わらないことも確認している。空間電荷分布測定から、非対称構造の複合体ではスキン層付近だけに電荷の蓄積が存在することを、他方で、対称構造の複合体では電荷の蓄積がほとんどないことを確認している。さらに、スキン層を強制的に除去したフィルムでは、電荷の蓄積も屈曲挙動も確認できないことを確認した。これらの結果から、屈曲変形の要因はスキン層付近に蓄積した電荷同士の反発によるものであることを見出している。第 4 章では PDMS/FL の屈曲変形挙動と空間電荷分布形成過程の関係を詳細に調査している。屈曲挙動測定から、PDMS/FL 複合体フィルムは常に陰極方向に屈曲することを、空間電荷分布測定から陽極側の複合体フィルム表面付近に負

電荷が蓄積されていることを確認した。空間電荷分布の測定が複合体フィルムの屈曲変形機構を解明するための手法の一つになり得ることを提唱している。第 5 章では極性基含有化合物そのものの電場下における流動現象を測定している。極性基含有化合物のうち、CR-U と FL は陽極への流動現象を示すことを確認し、シアノ基とフルオロアルキル基が電荷輸送のための担体としての役目を担っていることを見出している。以上の総括として、PDMS/極性基含有化合物複合体フィルムは電場応答性材料となる可能性を有することを確認し、屈曲変形機構は電荷の注入によりフィルム内部に蓄積した電荷間の反発によるものであると結論付けている。

本博士論文の内容は、3 報の発表論文（すべて申請者が筆頭著者）の内容に基づきまとめられており、当ユニットの審査基準の目安を満たしている。本研究で得られた成果は、新しいタイプの誘電アクチュエータの開発およびアクチュエータ性能の評価方法の確立に大きく寄与するものである。その新規性やオリジナル性も含めて、学術的および工学的に高い価値を有するものと評価できる。

最終審査における口頭試問より、博士論文の内容を十分理解しており、十分な学力を有していることを確認した。筆頭著者の論文 3 報はすべて英語で執筆しており、学会でも英語での口頭発表をしていることからグローバルに発信する能力も有していると判断した。以上のことから、審査委員全員一致で、本論文は博士（工学）の学位論文に値するものであると判断した。

(公表主要論文名)

1. Satoshi Tamura, Ryotaro Kiyono, Toshihiro Hirai, Solvent Composition Effect on PDMS Composite Dielectric Elastomer Actuator, *Mater. Sci. Appl.*, **12** (11), 504-518 (2021).
2. Satoshi Tamura, Ryotaro Kiyono, Toshihiro Hirai, Dielectric Elastomer Actuator Behavior of Silicone/Cyanoethylsucrose Composite Films: Morphology and Space-charge Distribution, *Nano Select*, **2**, 2440-2450 (2021).
3. Satoshi Tamura, Ryotaro Kiyono, Toshihiro Hirai, Dielectric Actuator Behavior and Space-charge Distribution of Silicone Composites Containing Polar Groups, *Trans. Mat. Res. Soc. Japan*, **45**(4), 143-148 (2020).